

# VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWES

(4)

## 10/509112 PCT INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT (Artikel 36 und Regel 70 PCT)

Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts M/43079-PCT	<b>WEITERES VORGEHEN</b> siehe Mitteilung über die Übersendung des internationalen vorläufigen Prüfungsberichts (Formblatt PCT/PEA/416)	
Internationales Aktenzeichen PCT/EP 03/03212	Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr) 27.03.2003	Prioritätsdatum (Tag/Monat/Jahr) 28.03.2002
Internationale Patentklassifikation (IPK) oder nationale Klassifikation und IPK C07D213/26		
Anmelder BASF AKTIENGESELLSCHAFT et al		

1. Dieser internationale vorläufige Prüfungsbericht wurde von der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde erstellt und wird dem Anmelder gemäß Artikel 36 übermittelt.



2. Dieser BERICHT umfaßt insgesamt 5 Blätter einschließlich dieses Deckblatts.

☒ Außerdem liegen dem Bericht ANLAGEN bei; dabei handelt es sich um Blätter mit Beschreibungen, Ansprüchen und/oder Zeichnungen, die geändert wurden und diesem Bericht zugrunde liegen, und/oder Blätter mit vor dieser Behörde vorgenommenen Berichtigungen (siehe Regel 70.16 und Abschnitt 607 der Verwaltungsrichtlinien zum PCT).

Diese Anlagen umfassen insgesamt 5 Blätter.

3. Dieser Bericht enthält Angaben zu folgenden Punkten:

- I ☒ Grundlage des Bescheids
- II ☐ Priorität
- III ☐ Keine Erstellung eines Gutachtens über Neuheit, erfinderische Tätigkeit und gewerbliche Anwendbarkeit
- IV ☐ Mangelnde Einheitlichkeit der Erfindung
- V ☒ Begründete Feststellung nach Regel 66.2 a)ii) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung
- VI ☐ Bestimmte angeführte Unterlagen
- VII ☐ Bestimmte Mängel der internationalen Anmeldung
- VIII ☐ Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung

Datum der Einreichung des Antrags  24.10.2003	Datum der Fertigstellung dieses Berichts  27.04.2004
Name und Postanschrift der mit der internationalen Prüfung beauftragten Behörde   Europäisches Patentamt D-80298 München Tel. +49 89 2399 - 0 Tx: 523656 epmu d Fax: +49 89 2399 - 4465	Bevollmächtigter Bediensteter  Menegaki, F Tel. +49 89 2399-8277 

**I. Grundlage des Berichts**

1. Hinsichtlich der **Bestandteile** der internationalen Anmeldung (*Ersatzblätter, die dem Anmeldeamt auf eine Aufforderung nach Artikel 14 hin vorgelegt wurden, gelten im Rahmen dieses Berichts als "ursprünglich eingereicht" und sind ihm nicht beigelegt, weil sie keine Änderungen enthalten (Regeln 70.16 und 70.17)*):

**Beschreibung, Seiten**

1-42 in der ursprünglich eingereichten Fassung

**Ansprüche, Nr.**

1-12 eingegangen am 19.02.2004 mit Schreiben vom 17.02.2004

2. Hinsichtlich der **Sprache**: Alle vorstehend genannten Bestandteile standen der Behörde in der Sprache, in der die internationale Anmeldung eingereicht worden ist, zur Verfügung oder wurden in dieser eingereicht, sofern unter diesem Punkt nichts anderes angegeben ist.

Die Bestandteile standen der Behörde in der Sprache: zur Verfügung bzw. wurden in dieser Sprache eingereicht; dabei handelt es sich um:

- ☐ die Sprache der Übersetzung, die für die Zwecke der internationalen Recherche eingereicht worden ist (nach Regel 23.1(b)).
- ☐ die Veröffentlichungssprache der internationalen Anmeldung (nach Regel 48.3(b)).
- ☐ die Sprache der Übersetzung, die für die Zwecke der internationalen vorläufigen Prüfung eingereicht worden ist (nach Regel 55.2 und/oder 55.3).

3. Hinsichtlich der in der internationalen Anmeldung offenbarten **Nucleotid- und/oder Aminosäuresequenz** ist die internationale vorläufige Prüfung auf der Grundlage des Sequenzprotokolls durchgeführt worden, das:

- ☐ in der internationalen Anmeldung in schriftlicher Form enthalten ist.
- ☐ zusammen mit der internationalen Anmeldung in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.
- ☐ bei der Behörde nachträglich in schriftlicher Form eingereicht worden ist.
- ☐ bei der Behörde nachträglich in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.
- ☐ Die Erklärung, daß das nachträglich eingereichte schriftliche Sequenzprotokoll nicht über den Offenbarungsgehalt der internationalen Anmeldung im Anmeldezeitpunkt hinausgeht, wurde vorgelegt.
- ☐ Die Erklärung, daß die in computerlesbarer Form erfassten Informationen dem schriftlichen Sequenzprotokoll entsprechen, wurde vorgelegt.

4. Aufgrund der Änderungen sind folgende Unterlagen fortgefallen:

- ☐ Beschreibung,      Seiten:
- ☐ Ansprüche,      Nr.:
- ☐ Zeichnungen,      Blatt:

5. ☐ Dieser Bericht ist ohne Berücksichtigung (von einigen) der Änderungen erstellt worden, da diese aus den angegebenen Gründen nach Auffassung der Behörde über den Offenbarungsgehalt in der ursprünglich eingereichten Fassung hinausgehen (Regel 70.2(c)).

*(Auf Ersatzblätter, die solche Änderungen enthalten, ist unter Punkt 1 hinzuweisen; sie sind diesem Bericht beizufügen.)*

6. Etwaige zusätzliche Bemerkungen:

**V. Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung**

- |                                |   |
|--------------------------------|---|
| 1. Feststellung                |   |
| Neuheit (N)                    | Ja: Ansprüche 1-12<br>Nein: Ansprüche   |
| Erfinderische Tätigkeit (IS)   | Ja: Ansprüche<br>Nein: Ansprüche 1-12   |
| Gewerbliche Anwendbarkeit (IA) | Ja: Ansprüche: 1-12<br>Nein: Ansprüche: |

2. Unterlagen und Erklärungen:

**siehe Beiblatt**

(V)

Die Anmelderin hat neue Ansprüche 1-12 eingereicht, die sich auf die ursprüngliche Offenbarung stützen.

In bezug auf den Internationalen Recherchenbericht, sowie auch die von der Anmelderin in der Beschreibung zitierten Dokumente, der Anmeldungsgegenstand unterscheidet sich strukturell von Dokument

(D1) WO 01/95721 aufgrund der vorliegenden Substituentengruppe "Het", verglichen mit Phenyl in (D1).

Dokument (D2) WO 96/23763 offenbart Alkoxyiminoessigsäurederivate;

(D3) WO 96/17840 offenbart Hydroxyacetamidoverbindungen, die sich aufgrund der vorliegenden Doppelbindung der Acrylamidgruppe unterscheiden.

Die per se beanspruchten Zwischenprodukte (II') werden im Stand der Technik nicht beschrieben, weil die entsprechende Reaktionsstufe bereits Zwischenprodukte mit einer Doppelbindung umfaßt, und werden somit ebenfalls als neu angesehen.

Die Voraussetzungen von Art.33(2) PCT werden erfüllt.

Die der Anmeldung zugrundeliegende Aufgabe scheint die Bereitstellung von neuen 2-**Heteroaryl**alkenamidderivaten zu sein, die, gegenüber den 2-Phenylalkenamiden (Acrylamide) aus (D1), Tabelle (I) darin, überraschend verbesserte Herbizidwirkung zeigen (s.S.2, Z.9-12).

Darüber hinaus sind aus dem Stand der Technik (D2)/(D3) weitere N-Phenylakylamide als Herbizide bekannt. In diesem Zusammenhang wird auf die spezifisch offenbarten Verbindungen 1-141 aus (D3) hingewiesen, die sich aufgrund der vorliegenden Doppelbindung unterscheiden, und sowohl eine 2-Heteroaryl-, als auch eine 2-Phenylsubstituentengruppe aufweisen.

Als nächster Stand der Technik wird (D1), insbesondere Beispiel I-32, auf S.36 darin angesehen, welches auch die neue trans-Konfiguration an der Doppelbindung aufweist. Die Anmelderin hat keine Vorteile gegenüber dem nächsten stand der Technik (D1) gezeigt, die auf die Einführung der neuen 2-Heteroarylgruppe zurückzuführen wären. Es wurde lediglich auf die Vorteile der trans-Verbindungen des Anmeldungsgegenstandes per se hingewiesen, ohne das strukturell nächstliegende Beispiel I-32 aus (D1) zu berücksichtigen.

Die per se beanspruchten Zwischenprodukte (II'), gemäß Anspruch 9, weisen weder das neue strukturelle Merkmal auf, noch sind sie unmittelbar weiter erfinderisch einsetzbar, und könnten somit nicht im gleichen erfinderischen Konzept mit den

Endprodukten (I) in Betracht gezogen werden.

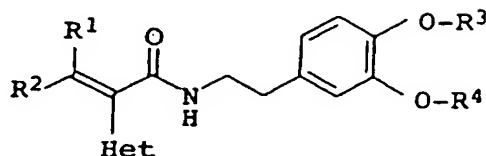
Die Voraussetzungen von Art.33(3) PCT werden als nicht erfüllt angesehen.

## Patentansprüche

## 1. Phenethylacrylamide der Formel I

5

10



in der die Substituenten  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$  und  $R^4$  folgende Bedeutungen haben:

15

$R^1$  ~~Wasserstoff,~~ Halogen,  $C_1$ - $C_4$ -Alkyl,  $C_1$ - $C_4$ -Alkoxy,  $C_3$ - $C_{10}$ -Cycloalkyl,  $C_1$ - $C_4$ -Halogenalkoxy oder  $C_1$ - $C_4$ -Halogenalkyl;

20

$R^2$  ~~Wasserstoff, Halogen,  $C_1$ - $C_4$ -Alkyl,  $C_1$ - $C_4$ -Alkoxy,  $C_3$ - $C_{10}$ -Cycloalkyl,  $C_1$ - $C_4$ -Halogenalkoxy oder  $C_1$ - $C_4$ -Halogenalkyl;~~

25

$R^3$   $C_1$ - $C_4$ -Alkyl,  $C_1$ - $C_4$ -Halogenalkyl, Propargyl,  $C_3$ - $C_4$ -Alkenyl oder  $-H_2C-C\equiv C-C(R^a, R^b)-R^c$ , worin  $R^a, R^b$  unabhängig voneinander Wasserstoff oder Methyl bedeuten und  $R^c$  für Wasserstoff oder  $C_1$ - $C_4$ -Alkyl steht;

$R^4$  Methyl oder  $C_1$ -Halogenalkyl; und

30

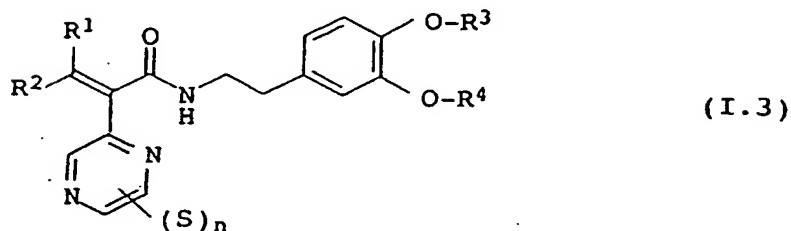
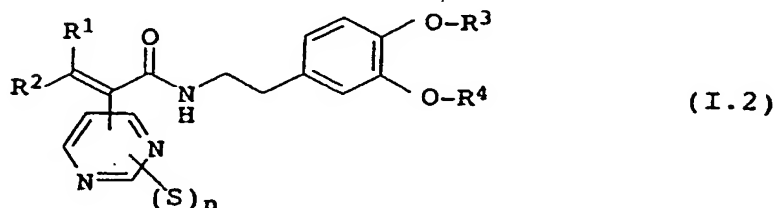
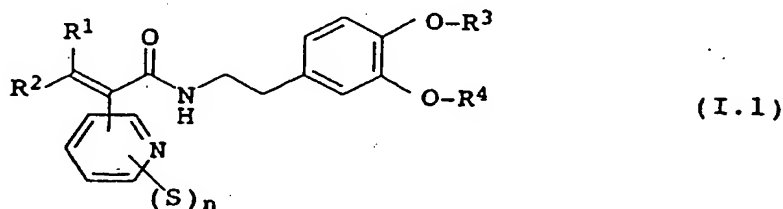
Het für einen 5- oder 6-Ring Heteroaromaten steht, der einen annellierten 5- oder 6-gliedrigen Carbocyclus aufweisen kann und der ausgewählt ist unter Heteroaromaten die 1, 2, 3 oder 4 Stickstoffatome als Ringglieder aufweisen, Heteroaromaten, die 1 oder 2 Stickstoffatome und 1 oder 2 weitere Heteroatome, ausgewählt unter Sauerstoff oder Schwefel, als Ringglieder aufweisen, und Heteroaromaten, die 1 oder 2 Heteroatome, ausgewählt unter Sauerstoff und Schwefel, als Ringglieder aufweisen, wobei Het unsubstituiert ist oder 1, 2 oder 3 Substituenten S, ausgewählt unter Halogen,  $C_1$ - $C_4$ -Alkyl,  $C_1$ - $C_4$ -Halogenalkoxy,  $C_1$ - $C_4$ -Halogenalkyl und  $C_1$ - $C_4$ -Alkoxy aufweisen kann.

40

45

~~2. Phenethylacrylamide der Formel I nach Anspruch 1, in der  $R^2$  für Wasserstoff steht und  $R^1$  für einen von Wasserstoff verschiedenen Rest steht.~~

2. Phenethylacrylamide der Formel I nach Anspruch 1<sup>1</sup>, worin R<sup>1</sup> für C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl oder C<sub>3</sub>-C<sub>6</sub>-Cycloalkyl und insbesondere für Ethyl, Isopropyl, tert.-Butyl oder Cyclopropyl steht.
- 5 <sup>3</sup>/<sub>4</sub>. Phenethylacrylamide der Formel I nach einem der vorhergehenden Ansprüche, worin Het ausgewählt ist unter Pyridyl, Pyrimidinyl, Pyrazinyl, Pyrrolyl, Thienyl, Furanyl, Pyrazolyl, Imidazolyl, Oxazolyl, Isoxazolyl, Thiazolyl und Isothiazolyl.
- 10 ~~7. Phenethylacrylamide der Formel I nach Anspruch 1, in der R<sup>1</sup> und R<sup>2</sup> gleich sind und Cl, F oder CH<sub>3</sub> bedeuten.~~
- 4 <sup>8</sup>/<sub>15</sub>. Phenethylacrylamide der Formel I nach einem der vorhergehenden Ansprüche, worin Het einen oder zwei Substituenten S aufweist, die an solche Ringatome gebunden sind, die der Verknüpfungsstelle zur Doppelbindung nicht benachbart sind.
- 5 <sup>7</sup>/<sub>1</sub>. Phenethylacrylamide der Formeln I.1, I.2 und I.3

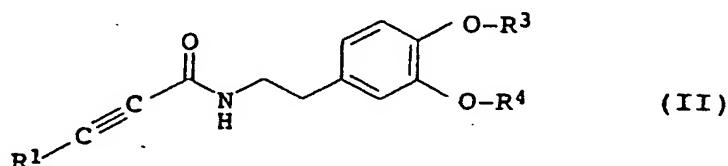


in der die Substituenten S, R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup>, R<sup>3</sup> und R<sup>4</sup> die zuvor genannten Bedeutungen haben und n für 1 oder 2 steht, und S nicht in ortho-Position zur Verknüpfungsstelle gebunden ist.

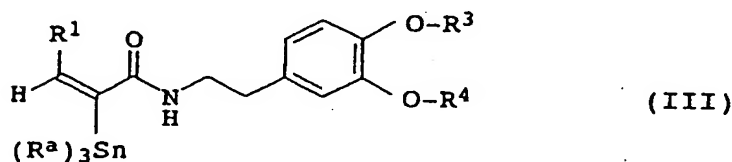
6  
8.

Verfahren zur Herstellung von Phenethylacrylamiden der allgemeinen Formel I gemäß einem der vorhergehenden Ansprüche, worin  $R^2$  Wasserstoff bedeutet und  $R^1$  für Wasserstoff,  $C_1$ - $C_4$ -Alkyl,  $C_3$ - $C_8$ -Cycloalkyl oder  $C_1$ - $C_4$ -Halogenalkyl steht und Het,  $R^3$  und  $R^4$  die zuvor genannten Bedeutungen besitzen, umfassend die folgenden Schritte:

a) Umsetzung eines Phenethylamids der Formel II,



worin die Substituenten  $R^1$ ,  $R^3$  und  $R^4$  die zuvor genannten Bedeutungen haben, mit einem Trialkylstannan  $(R^a)_3SnH$ , worin  $R^a$  für Alkyl steht, wobei man eine Verbindung der Formel III erhält,



worin die Substituenten  $R^a$ ,  $R^1$ ,  $R^3$  und  $R^4$  die zuvor genannten Bedeutungen haben, und

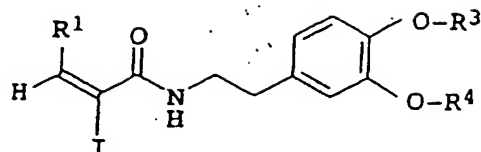
b) Umsetzung der in Schritt a) erhaltenen Verbindung III mit einer Verbindung Het-Hal, worin Hal für Brom oder Iod steht und Het die in Anspruch 1 angegebene Bedeutung aufweist, in Gegenwart katalytisch aktiver Mengen einer Übergangsmetallverbindung einer Gruppe VIII-Metalls;

oder

a') Umsetzung einer Verbindung der Formel II mit wenigstens stöchiometrischen Mengen Iod, wobei man eine Verbindung der Formel IV erhält,



46

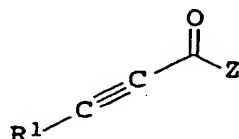


(IV)

worin die Substituenten  $R^1$ ,  $R^3$  und  $R^4$  die zuvor genannten Bedeutungen haben, und

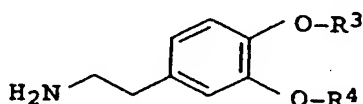
- 10 b') Umsetzung der in Schritt a') erhaltenen Verbindung IV mit einem Stannan der Formel  $(R^a)_3\text{Sn-Het}$ , worin Het die in Anspruch 1 angegebene Bedeutung aufweist, in Gegenwart katalytisch aktiver Mengen einer Übergangsmetallverbindung eines Gruppe VIII-Metalls.

- 15 7. Verfahren nach Anspruch 6, umfassend zusätzlich die Herstellung des Phenethylamids der Formel II, wobei man eine Propiolsäureverbindung der Formel V



(V)

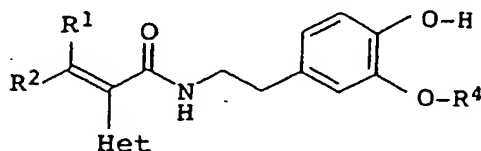
worin  $R^1$  die zuvor genannte Bedeutung hat und Z für Halogen oder OH steht, in an sich bekannter Weise mit einem Phenethylamin der allgemeinen Formel VI umgesetzt,



(VI)

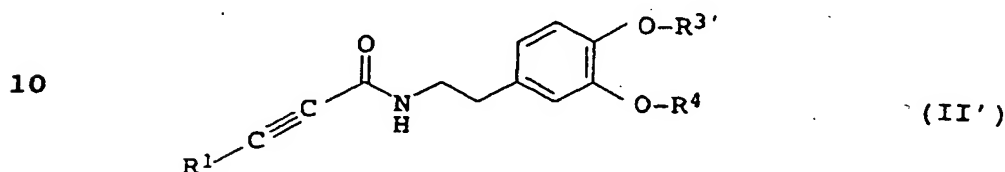
worin  $R^3$  und  $R^4$  die zuvor genannten Bedeutungen aufweisen.

- 8  
10. Verfahren zur Herstellung von Phenethylacrylamiden gemäß Anspruch 1 der allgemeinen Formel I, wobei man ein Phenethylacrylamid der Formel I mit  $R^3 = H$ :

(I { $R^3 = H$ })

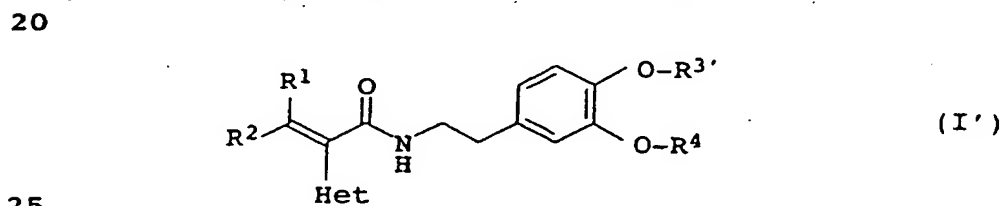
worin Het,  $R^1$ ,  $R^2$  und  $R^4$  die zuvor genannten Bedeutungen haben, mit einer Verbindung der Formel  $R^3$ -Y, worin  $R^3$  die zuvor angegebenen Bedeutung hat und Y für eine nucleophil verdrängbare Abgangsgruppe steht, umgesetzt.

- 5 <sup>g</sup>  
11. Phenethylamid der Formel II'



- 15 worin die Substituenten  $R^1$  und  $R^4$  die zuvor genannten Bedeutungen haben,  $R^{3'}$  die für  $R^3$  angegebenen Bedeutungen besitzt oder  $R^{3'}$  für Wasserstoff oder eine OH-Schutzgruppe steht.

- 10 <sup>10</sup>  
12. Phenethylacrylamide der Formel I':



worin Het,  $R^1$ ,  $R^2$  und  $R^4$  die zuvor genannten Bedeutungen haben und  $R^{3'}$  Wasserstoff oder eine OH-Schutzgruppe bedeutet.

- 30 11  
13. Mittel zur Bekämpfung von pflanzenpathogenen Schadpilzen, enthaltend einen festen oder flüssigen Trägerstoff und eine Verbindung der Formel I gemäß Ansprüchen 1 bis 5

- 35 12  
14. Verfahren zur Bekämpfung von pflanzenpathogenen Schadpilzen, dadurch gekennzeichnet, dass man die Pilze oder die vor Pilzbefall zu schützenden Materialien, Pflanzen, den Boden oder Saatgüter mit einer wirksamen Menge einer Verbindung der allgemeinen Formel I gemäß Ansprüchen 1 bis 5 behandelt.

40

45